



TITLE:

Radiation Quenching of Radio-and
Radiothermoluminescence of ZnS
Phosphors, Luminescent Process under
Excitation(Abstract_要旨)

AUTHOR(S):

Fujimura, Ryoichiro

CITATION:

Fujimura, Ryoichiro. Radiation Quenching of Radio-and Radiothermoluminescence of ZnS Phosphors, Luminescent Process under Excitation. 京都大学, 1965, 理学博士

ISSUE DATE:

1965-12-14

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/211727>

RIGHT:

氏 名	藤 村 亮 一 郎 ふじ むら りょう いち ろう
学 位 の 種 類	理 学 博 士
学 位 記 番 号	論 理 博 第 115 号
学 位 授 与 の 日 付	昭 和 40 年 12 月 14 日
学 位 授 与 の 要 件	学 位 規 則 第 5 条 第 2 項 該 当
学 位 論 文 題 目	Radiation Quenching of Radio-and Radiothermoluminescence of ZnS Phosphors, Luminescent Process under Excitation (ZnS 蛍光体の放射線発光と放射線熱発光の放射線消光, 励起時の発光過程) (主 査)
論 文 調 査 委 員	教 授 四 手 井 綱 彦 教 授 武 藤 二 郎 教 授 安 見 真 次 郎

論 文 内 容 の 要 旨

ZnS 蛍光体の紫外線発光と放射線発光とを比べると、いくつかの相異点がある。たとえば、放射線照射をくり返すと、蛍光体の発光効率が低下する。また、 β 線発光の build up 曲線の deficiency area は、紫外線発光に比べて小さいことが知られ、これらの原因は、放射線損傷にあるといわれている。陰極線による蛍光のスペクトルが、紫外線発光に比べて、低エネルギー部が弱く、高エネルギー側が強いと報告されている。この原因も十分明らかになっていない。この論文は、系統的な実験をおこなって、放射線発光の特異性を解明することを目的としている。

実験につかった蛍光体は、ZnS : Cu : Cl の粉末結晶で、その紫外線発光スペクトルは、異なる熱消光温度をもつ青と緑の発光帯をもっている。放射線としては、10mc の Sr-90 の β 線と線型加速器からの 5.5MeV 電子線を採用し、紫外線発光源として 365m μ の光をつかって、紫外線発光と放射線発光とを比べた。実験の結果、つぎの諸点が明らかになった。

1) 立方晶系と六方晶系の結晶が混在する試料では、紫外線励起時に青と緑の発光帯が観測されたが、電子線励起時には青成分が消光された。この青成分の消光は六方晶系のみの試料でも認められ、 β 線励起時にも同様の結果を得た。

2) つぎに Cu 濃度依存性を見ると、紫外線励起では、Cu 濃度0.1%迄はその相対光度が増加し、それより濃度が高くなると、消光がはじまる。 β 線励起では濃度による発光の増大は少なく、0.02%の濃度から発光がゆるやかに低下する。

3) 発光の build up 曲線の初期値と飽和値の比は、紫外線励起ではほぼ0であったが、 β 線励起では0.1~0.5を得た。また、normalized deficiency area の大きさは、混晶試料では β 線励起時が紫外線励起時より小さいが、立方体結晶および六方体結晶の試料では、紫外線励起の方が小さい。

これらの実験結果より放射線発光の過程を論ずるため、つぎのように仮定する。紫外線発光と放射線発光とは、その励起断面積は同じでないが、発光過程は同じで Schön-Klasens 模型に従う。両励起の本質的

な相異点は、高いエネルギーをもつエネルギー・キャリアが放射線励起時には発生することにある。この仮定によって、放射線損傷を仮定することなく、青消光, build up の差などを理解することができる。すなわち、放射線照射にともなうエネルギー・キャリアが発光の起因になるとともに、発光中心を減少させるように作用し、その消光率を $1-q_A$ であらわす。スペクトルの差異から青中心の q_A の最小値は 0.7 ~ 0.9 と評価される。発光の濃度依存性のちがいは、緑中心の q_A が Cu 濃度についての増加函数とすれば、実験結果を説明することができる。また、build up 曲線の初期値/飽和値の比から、緑中心の q_A は 0.7 より小さくでる。このような q_A の値を得るには、放射線にともなって発生するエネルギー・キャリアは、入射放射線の通路に沿って局在し、その領域の大きさは、 $10^{-12} \sim 10^{-16} \text{cm}^3$ となる。この値は、Kallman および Marray and Meyer 等の評価とほぼ一致する。

放射線発光スペクトルの青成分の低下は、放射線強度、照射量などに全く影響されなかったので、放射線損傷はその消光の原因としては可能性がない。また、Birks の ionization quenching のモデルを仮定しても、build up 曲線の説明は困難である。さらに、hot spot のような形のエネルギー移動によると考えても、 q_A の大小関係の説明は困難である。青消光は、エネルギー・キャリアによって励起された充満帯の電子が、発光中心と結合することが原因すると考えられる。また、このエネルギー・キャリアは、excited exciton である可能性が大きいと結論している。

参考論文 1 および 2 は、ZnS の電場発光に関する研究で、1 では、不純物と温度の効果を、2 では電圧依存性と発光の時間的変化とをしらべ、電場発光の機構を論じている。参考論文 3 は、ゲルマニウムを電子線照射したときの電気伝導度の変化を測定し、その trap および acceptor のエネルギー準位を求めたものである。参考論文 4 は、主論文につづくもので、放射線熱発光をしらべ、主論文でとりあつかったと同様の消光作用が trapping の過程にもみられることを明らかにした。参考論文 5 は、ZnS 蛍光体の発光を各種の放射線についてしらべ、各放射線の dE/dx と放射線消光の関係を論じている。

論文審査の結果の要旨

ZnS 蛍光体の放射線発光は古くから知られているが、その発光機構は未だ十分に解明されていない。申請者は本論文でこの課題をとりあげ、紫外線発光と電子線発光とを比較して、その特性を明らかにするとともに、その発光機構を論じている。実験の結果得られた放射線発光の主要特性は次の諸点である。

1) 紫外線励起の発光スペクトルは、青と緑の二つの蛍光帯をもっているが、放射線励起では青蛍光帯が消光される。

2) Cu 濃度と蛍光の強さとの関係を見ると、紫外線励起の場合は、はじめは Cu の濃度とともに蛍光の相対強度は増大し、Cu の濃度 0.1% をこえると濃度消光がはじまる。これに反して放射線励起では、Cu 濃度依存性は弱く、0.02% から消光作用がはじまり、発光強度はゆるやかに低下する。

3) 発光の build up 曲線を比べて見ると、初期値と飽和値の比、normalized deficiency area が、紫外線励起と放射線励起とは同じでない。

上記の青成分の消光は、照射量、放射線強等によって余り影響されない。このことより消光が、放射線損傷に由来するとは考えられない。また、Birks の ionization quenching のモデルを仮定しても build up

の特性は理解できない。さらに、hot spot のような型のエネルギー移動を考えても、放射線消光の理解に適切でない。

結局、発光過程は、紫外線励起および放射線励起とも Schön-Klasens 模型に従うものとし、放射線によって蛍光体内に発生するエネルギー・キャリアが、入射放射線の通路に沿う $10^{-12} \sim 10^{-16} \text{cm}^3$ の領域内に局在して、その領域で発光と消光の両過程が競争するものと結論している。放射線の消光作用の物理的意味は、発生したエネルギー・キャリアによって、充滿帯の電子が励起され、それが空の発光中心にとらえられるときに消光作用が実現すると考えている。また、このような作用を生ずるエネルギー・キャリアは、実験の結果より推論すると、excited exciton である可能性が大きいとしている。この放射線消光の考え方は、申請者がはじめて提起したもので、興味深い考え方である。参考論文4では、このような消光作用が、放射線熱発光の trapping process でも見られることを明らかにしている。

以上のように、ここに得られた結論は、系統的な実験の上にたてられたもので、その論旨も妥当である。また、この研究成果はこの分野における研究に一つの指針を与えたものである。

参考論文5編は、光物性および放射作用に関する研究報告で、いずれもそれぞれの分野における貴重な資料である。

要するに、藤村亮一郎は放射線物理学とその関連分野における重要な問題を解明して、この研究分野の発展に寄与貢献したのであって、放射線物理学についての、豊富な知識とすぐれた研究能力をもっていることが認められる。

よって、本論文は理学博士の学位論文として価値があるものと認める。